

PATENT COOPERATION TREATY

WO 01/81449
PCT/JP01/03242

PCT

NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

OHSIMA, Masataka
Ohshima Patent Office
Fukuya Building
3, Yotsuya 4-chome
Shinjuku-ku
Tokyo 160-0004
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 01 November 2001 (01.11.01)		IMPORTANT NOTICE	
Applicant's or agent's file reference G-3 (USO)			
International application No. PCT/JP01/03242	International filing date (day/month/year) 16 April 2001 (16.04.01)	Priority date (day/month/year) 20 April 2000 (20.04.00)	
Applicant KABUSHIKI KAISHA UENO SEIYAKU OYO KENKYUSHO et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has **communicated**, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this notice:
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:
CN,EP,JP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 01 November 2001 (01.11.01) under No. WO 01/81449

REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination (at present, all PCT Contracting States are bound by Chapter II).

REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the **national phase**, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and the PCT Applicant's Guide, Volume II.

<p style="text-align: center;">The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No. (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer</p> <p style="text-align: center; font-weight: bold;">J. Zahra</p> <p>Telephone No. (41-22) 338.91.11</p>
---	---

THIS PAGE BLANK (USPTO)



P.B.5818 - Patentlaan 2
2280 HV Rijswijk (ZH)
☎ +31 70 340 2040
TX 31651 epo nl
FAX +31 70 340 3016

Europäisches
Patentamt

Zweigstelle
in Den Haag
Recherchen-
abteilung

European
Patent Office

Branch at
The Hague
Search
division

Office européen
des brevets

Département à
La Haye
Division de la
recherche

Cresswell, Thomas Anthony
J.A. KEMP & CO.
14 South Square
Gray's Inn
London WC1R 5JJ
GRANDE BRETAGNE

J.A. KEMP & Co.

Rec'd. 29 MAY 2003

Action by.....

Datum/Date

30.05.03

Zeichen/Ref./Réf.

N.84487 TAC

Anmeldung Nr./Application No./Demande n°/Patent Nr./Patent No./Brevet n°.

01919953.8-2102-JP0103242

Anmelder/Applicant/Demandeur/Patentinhaber/Proprietor/Titulaire

KABUSHIKI KAISHA UENO SEIYAKU OYO KENKYUSHO

COMMUNICATION

The European Patent Office herewith transmits as an enclosure the European search report for the above-mentioned European patent application.

If applicable, copies of the documents cited in the European search report are attached.

☒ Additional set(s) of copies of the documents cited in the European search report is (are) enclosed as well.

REFUND OF THE SEARCH FEE

If applicable under Article 10 Rules relating to fees, a separate communication from the Receiving Section on the refund of the search fee will be sent later.



THIS PAGE BLANK (USPTO)



European Patent
Office

**SUPPLEMENTARY
EUROPEAN SEARCH REPORT**

Application Number
EP 01 91 9953

DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT			
Category	Citation of document with indication, where appropriate, of relevant passages	Relevant to claim	CLASSIFICATION OF THE APPLICATION (Int.CI.7)
X	EP 0 380 286 A (NIPPON OIL CO LTD) 1 August 1990 (1990-08-01) * page 3, line 32 - line 44; claims 1-4 * * page 4, line 3 - line 8 *	1-3,5, 7-10	C08G63/02 C08G63/60 C08K3/00
A	WO 94 29366 A (DU PONT) 22 December 1994 (1994-12-22)		
D	& JP 08 511573 T 3 December 1996 (1996-12-03)		
			TECHNICAL FIELDS SEARCHED (Int.CI.7)
			C08G C08K
The supplementary search report has been based on the last set of claims valid and available at the start of the search.			
Place of search THE HAGUE		Date of completion of the search 21 May 2003	Examiner Decocker, L
CATEGORY OF CITED DOCUMENTS			
X : particularly relevant if taken alone Y : particularly relevant if combined with another document of the same category A : technological background O : non-written disclosure P : intermediate document		T : theory or principle underlying the invention E : earlier patent document, but published on, or after the filing date O : document cited in the application L : document cited for other reasons & : member of the same patent family, corresponding document	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**ANNEX TO THE EUROPEAN SEARCH REPORT
ON EUROPEAN PATENT APPLICATION NO.**

EP 01 91 9953

This annex lists the patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned European search report.
The members are as contained in the European Patent Office EDP file on
The European Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

21-05-2003

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 0380286	A	01-08-1990	JP	2196819 A	03-08-1990
			EP	0380286 A2	01-08-1990
			US	4999416 A	12-03-1991
WO 9429366	A	22-12-1994	US	5397502 A	14-03-1995
			DE	69418325 D1	10-06-1999
			DE	69418325 T2	04-11-1999
			EP	0702702 A1	27-03-1996
			JP	2825661 B2	18-11-1998
			JP	8511573 T	03-12-1996
			SG	45436 A1	16-01-1998
			WO	9429366 A1	22-12-1994

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PCT

REQUEST

The undersigned requests that the present international application be processed according to the Patent Cooperation Treaty.

For receiving Office use only

International Application No.

International Filing Date

Name of receiving Office and "PCT International Application"

Applicant's or agent's file reference
(if desired) (12 characters maximum) G - 3 (USO)

Box No. I TITLE OF INVENTION	
LIQUID CRYSTAL POLYESTER RESIN	
Box No. II APPLICANT	
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.) KABUSHIKI KAISHA UENO SEIYAKU OYO KENKYUSHO 4-8, Koraibashi 2-chome, Chuo-ku, Osaka-shi, OSAKA 541-8543 JAPAN	
<input type="checkbox"/> This person is also inventor.	
Telephone No.	
Facsimile No.	
Teleprinter No.	
State (that is, country) of nationality: JAPAN	State (that is, country) of residence: JAPAN
This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input checked="" type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box	
Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)	
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.) UENO Ryuzo 10-27, Nangocho, Nishinomiya-shi, HYOGO 662-0038 JAPAN	
This person is: <input type="checkbox"/> applicant only <input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor <input type="checkbox"/> inventor only (If this check-box is marked, do not fill in below.)	
State (that is, country) of nationality: JAPAN	State (that is, country) of residence: JAPAN
This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box	
<input checked="" type="checkbox"/> Further applicants and/or (further) inventors are indicated on a continuation sheet.	
Box No. IV AGENT OR COMMON REPRESENTATIVE; OR ADDRESS FOR CORRESPONDENCE	
The person identified below is hereby/has been appointed to act on behalf of the applicant(s) before the competent International Authorities as: <input checked="" type="checkbox"/> agent <input type="checkbox"/> common representative	
Name and address: (Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country.) 8060 OHSHIMA Masataka OHSHIMA PATENT OFFICE, Fukuya Bldg., 3, Yotsuya 4-chome, Shinjuku-ku, TOKYO 160-0004 JAPAN	
Telephone No.	
03-3356-7565	
Facsimile No.	
03-3356-8826	
Teleprinter No.	
<input type="checkbox"/> Address for correspondence: Mark this check-box where no agent or common representative is/has been appointed and the space above is used instead to indicate a special address to which correspondence should be sent.	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Continuation of Box No. III FURTHER APPLICANT(S) AND/OR (FURTHER) INVENTOR(S)	
<i>If none of the following sub-boxes is used, this sheet should not be included in the request.</i>	
<p>Name and address: <i>(Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</i></p> <p>KITAYAMA Masaya</p> <p>3-76, Yamamotohigashi, Takaraduka-shi, HYOGO</p> <p>665-0881 JAPAN</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only <i>(If this check-box is marked, do not fill in below.)</i></p>
State <i>(that is, country)</i> of nationality: JAPAN	State <i>(that is, country)</i> of residence: JAPAN
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p>Name and address: <i>(Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</i></p> <p>KOMETANI Kiichi</p> <p>2-19, Masumi-cho, Ikeda-shi, OSAKA 563-0041</p> <p>JAPAN</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only <i>(If this check-box is marked, do not fill in below.)</i></p>
State <i>(that is, country)</i> of nationality: JAPAN	State <i>(that is, country)</i> of residence: JAPAN
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p>Name and address: <i>(Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</i></p> <p>KATO Hiroyuki</p> <p>6-3, Higashiunenoyamate 1-chome, Kawanishi-shi, HYOGO</p> <p>666-0114 JAPAN</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only <i>(If this check-box is marked, do not fill in below.)</i></p>
State <i>(that is, country)</i> of nationality: JAPAN	State <i>(that is, country)</i> of residence: JAPAN
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p>Name and address: <i>(Family name followed by given name; for a legal entity, full official designation. The address must include postal code and name of country. The country of the address indicated in this Box is the applicant's State (that is, country) of residence if no State of residence is indicated below.)</i></p> <p>UEDA Kazunori</p> <p>7-18, Takatsuka-cho, Nishinomiya-shi, HYOGO 662-0066</p> <p>JAPAN</p>	<p>This person is:</p> <p><input type="checkbox"/> applicant only</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> applicant and inventor</p> <p><input type="checkbox"/> inventor only <i>(If this check-box is marked, do not fill in below.)</i></p>
State <i>(that is, country)</i> of nationality: JAPAN	State <i>(that is, country)</i> of residence: JAPAN
<p>This person is applicant for the purposes of: <input type="checkbox"/> all designated States <input type="checkbox"/> all designated States except the United States of America <input checked="" type="checkbox"/> the United States of America only <input type="checkbox"/> the States indicated in the Supplemental Box</p>	
<p><input type="checkbox"/> Further applicants and/or (further) inventors are indicated on another continuation sheet.</p>	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Box No.V DESIGNATION OF STATES

The following designations are hereby made under Rule 4.9(a) (mark the applicable check-boxes; at least one must be marked):

Regional Patent

- ☐ **AP ARIPO Patent:** GH Ghana, GM Gambia, KE Kenya, LS Lesotho, MW Malawi, SD Sudan, SL Sierra Leone, SZ Swaziland, TZ United Republic of Tanzania, UG Uganda, ZW Zimbabwe, and any other State which is a Contracting State of the Harare Protocol and of the PCT
- ☐ **EA Eurasian Patent:** AM Armenia, AZ Azerbaijan, BY Belarus, KG Kyrgyzstan, KZ Kazakhstan, MD Republic of Moldova, RU Russian Federation, TJ Tajikistan, TM Turkmenistan, and any other State which is a Contracting State of the Eurasian Patent Convention and of the PCT
- ☒ **EP European Patent:** AT Austria, BE Belgium, CH and LI Switzerland and Liechtenstein, CY Cyprus, DE Germany, DK Denmark, ES Spain, FI Finland, FR France, GB United Kingdom, GR Greece, IE Ireland, IT Italy, LU Luxembourg, MC Monaco, NL Netherlands, PT Portugal, SE Sweden, and any other State which is a Contracting State of the European Patent Convention and of the PCT
- ☐ **OA OAPI Patent:** BF Burkina Faso, BJ Benin, CF Central African Republic, CG Congo, CI Côte d'Ivoire, CM Cameroon, GA Gabon, GN Guinea, GW Guinea-Bissau, ML Mali, MR Mauritania, NE Niger, SN Senegal, TD Chad, TG Togo, and any other State which is a member State of OAPI and a Contracting State of the PCT (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line)

National Patent (if other kind of protection or treatment desired, specify on dotted line):

- | | |
|---|---|
| <input type="checkbox"/> AE United Arab Emirates | <input type="checkbox"/> LR Liberia |
| <input type="checkbox"/> AL Albania | <input type="checkbox"/> LS Lesotho |
| <input type="checkbox"/> AM Armenia | <input type="checkbox"/> LT Lithuania |
| <input type="checkbox"/> AT Austria | <input type="checkbox"/> LU Luxembourg |
| <input type="checkbox"/> AU Australia | <input type="checkbox"/> LV Latvia |
| <input type="checkbox"/> AZ Azerbaijan | <input type="checkbox"/> MA Morocco |
| <input type="checkbox"/> BA Bosnia and Herzegovina | <input type="checkbox"/> MD Republic of Moldova |
| <input type="checkbox"/> BB Barbados | <input type="checkbox"/> MG Madagascar |
| <input type="checkbox"/> BG Bulgaria | <input type="checkbox"/> MK The former Yugoslav Republic of Macedonia |
| <input type="checkbox"/> BR Brazil | <input type="checkbox"/> MN Mongolia |
| <input type="checkbox"/> BY Belarus | <input type="checkbox"/> MW Malawi |
| <input type="checkbox"/> CA Canada | <input type="checkbox"/> MX Mexico |
| <input type="checkbox"/> CH and LI Switzerland and Liechtenstein | <input type="checkbox"/> NO Norway |
| <input checked="" type="checkbox"/> CN China | <input type="checkbox"/> NZ New Zealand |
| <input type="checkbox"/> CR Costa Rica | <input type="checkbox"/> PL Poland |
| <input type="checkbox"/> CU Cuba | <input type="checkbox"/> PT Portugal |
| <input type="checkbox"/> CZ Czech Republic | <input type="checkbox"/> RO Romania |
| <input type="checkbox"/> DE Germany | <input type="checkbox"/> RU Russian Federation |
| <input type="checkbox"/> DK Denmark | <input type="checkbox"/> SD Sudan |
| <input type="checkbox"/> DM Dominica | <input type="checkbox"/> SE Sweden |
| <input type="checkbox"/> EE Estonia | <input type="checkbox"/> SG Singapore |
| <input type="checkbox"/> ES Spain | <input type="checkbox"/> SI Slovenia |
| <input type="checkbox"/> FI Finland | <input type="checkbox"/> SK Slovakia |
| <input type="checkbox"/> GB United Kingdom | <input type="checkbox"/> SL Sierra Leone |
| <input type="checkbox"/> GD Grenada | <input type="checkbox"/> TJ Tajikistan |
| <input type="checkbox"/> GE Georgia | <input type="checkbox"/> TM Turkmenistan |
| <input type="checkbox"/> GH Ghana | <input type="checkbox"/> TR Turkey |
| <input type="checkbox"/> GM Gambia | <input type="checkbox"/> TT Trinidad and Tobago |
| <input type="checkbox"/> HR Croatia | <input type="checkbox"/> TZ United Republic of Tanzania |
| <input type="checkbox"/> HU Hungary | <input type="checkbox"/> UA Ukraine |
| <input type="checkbox"/> ID Indonesia | <input type="checkbox"/> UG Uganda |
| <input type="checkbox"/> IL Israel | <input checked="" type="checkbox"/> US United States of America |
| <input type="checkbox"/> IN India | <input type="checkbox"/> UZ Uzbekistan |
| <input type="checkbox"/> IS Iceland | <input type="checkbox"/> VN Viet Nam |
| <input checked="" type="checkbox"/> JP Japan | <input type="checkbox"/> YU Yugoslavia |
| <input type="checkbox"/> KE Kenya | <input type="checkbox"/> ZA South Africa |
| <input type="checkbox"/> KG Kyrgyzstan | <input type="checkbox"/> ZW Zimbabwe |
| <input type="checkbox"/> KP Democratic People's Republic of Korea | |
| <input checked="" type="checkbox"/> KR Republic of Korea | |
| <input type="checkbox"/> KZ Kazakhstan | |
| <input type="checkbox"/> LC Saint Lucia | |
| <input type="checkbox"/> LK Sri Lanka | |

Check-boxes reserved for designating States which have become party to the PCT after issuance of this sheet:

Precautionary Designation Statement: In addition to the designations made above, the applicant also makes under Rule 4.9(b) all other designations which would be permitted under the PCT except any designation(s) indicated in the Supplemental Box as being excluded from the scope of this statement. The applicant declares that those additional designations are subject to confirmation and that any designation which is not confirmed before the expiration of 15 months from the priority date is to be regarded as withdrawn by the applicant at the expiration of that time limit. (Confirmation (including fees) must reach the receiving Office within the 15-month time limit.)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

Box No. VI PRIORITY CLAIM		<input type="checkbox"/> Further priority claims are indicated in the Supplemental Box.		
Filing date of earlier application (day/month/year)	Number of earlier application	Where earlier application is:		
		national application: country	regional application: regional Office	international application: receiving Office
item (1) 20.04.00	Patent Application No.2000-119762	Japan		
item (2)				
item (3)				

☒ The receiving Office is requested to prepare and transmit to the International Bureau a certified copy of the earlier application(s) (only if the earlier application was filed with the Office which for the purposes of the present international application is the receiving Office) identified above as item(s): (1)

* Where the earlier application is an ARIPO application, it is mandatory to indicate in the Supplemental Box at least one country party to the Paris Convention for the Protection of Industrial Property for which that earlier application was filed (Rule 4.10(b)(ii)). See Supplemental Box.

Box No. VII INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY			
Choice of International Searching Authority (ISA) <small>(if two or more International Searching Authorities are competent to carry out the international search, indicate the Authority chosen; the two-letter code may be used):</small>		Request to use results of earlier search; reference to that search (if an earlier search has been carried out by or requested from the International Searching Authority):	
ISA / JP		Date (day/month/year)	Number Country (or regional Office)

Box No. VIII CHECK LIST; LANGUAGE OF FILING	
This international application contains the following number of sheets: request : 4 description (excluding sequence listing part) : 17 claims : 1 abstract : 1 drawings : 0 sequence listing part of description : 0 Total number of sheets : 23	This international application is accompanied by the item(s) marked below: 1. <input checked="" type="checkbox"/> fee calculation sheet 2. <input checked="" type="checkbox"/> separate signed power of attorney 3. <input type="checkbox"/> copy of general power of attorney; reference number, if any: 4. <input type="checkbox"/> statement explaining lack of signature 5. <input type="checkbox"/> priority document(s) identified in Box No. VI as item(s): 6. <input type="checkbox"/> translation of international application into (language): 7. <input type="checkbox"/> separate indications concerning deposited microorganism or other biological material 8. <input type="checkbox"/> nucleotide and/or amino acid sequence listing in computer readable form 9. <input type="checkbox"/> other (specify):
Figure of the drawings which should accompany the abstract:	Language of filing of the international application: Japanese

Box No. IX SIGNATURE OF APPLICANT OR AGENT	
<small>Next to each signature, indicate the name of the person signing and the capacity in which the person signs (if such capacity is not obvious from reading the request).</small>	
(8060) OHSHIMA Masataka, patent attorney	

For receiving Office use only	
1. Date of actual receipt of the purported international application: 3. Corrected date of actual receipt due to later but timely received papers or drawings completing the purported international application: 4. Date of timely receipt of the required corrections under PCT Article 11(2): 5. International Searching Authority (if two or more are competent): ISA / JP	2. Drawings: <input type="checkbox"/> received: <input type="checkbox"/> not received: 6. <input type="checkbox"/> Transmittal of search copy delayed until search fee is paid.

For International Bureau use only	
Date of receipt of the record copy by the International Bureau:	

THIS PAGE BLANK (USPTO)

EP · US

PCT

国際調査報告

(法 8 条、法施行規則第 40、41 条)
〔PCT 18 条、PCT 規則 43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 G-3 (USO)	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記 5 を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO1/03242	国際出願日 (日.月.年) 16.04.01	優先日 (日.月.年) 20.04.00
出願人 (氏名又は名称) 株式会社上野製薬応用研究所		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第 41 条 (PCT 18 条) の規定に従い出願人に送付する。
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 2 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記載した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない (第 I 欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している (第 II 欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 第 III 欄に示されているように、法施行規則第 47 条 (PCT 規則 38.2(b)) の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から 1 カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、

第 _____ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int. Cl⁷ C08G63/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
Int. Cl⁷ C08G63/00-6.3/91

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2001年
日本国公開実用新案公報 1971-2001年
日本国登録実用新案公報 1994-2001年
日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	US 5198572 A (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 30. 5月. 1993 (30. 05. 93)、第4欄、 第45-67行& JP 5-105744 A、第1欄、 第2-23行& EP 498283 A2	1-5

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
09. 07. 01

国際調査報告の発送日

17.07.01

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号 100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
森川 聡



4 J 9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001 年 11 月 1 日 (01.11.2001)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/81449 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C08G 63/02 千 665-0881 兵庫県宝塚市山本東3-76 Hyogo (JP). 米谷起一 (KOMETANI, Kiichi) [JP/JP]; 千 563-0041 大阪府池田市満寿美町2-19 Osaka (JP). 加藤博行 (KATO, Hiroyuki) [JP/JP]; 千 666-0114 兵庫県川西市東畦野山手1丁目6-3 Hyogo (JP). 植田和憲 (UEDA, Kazunori) [JP/JP]; 千 662-0066 兵庫県西宮市高塚町7-18 Hyogo (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP01/03242
- (22) 国際出願日: 2001 年 4 月 16 日 (16.04.2001)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2000-119762 2000 年 4 月 20 日 (20.04.2000) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社上野製薬応用研究所 (KABUSHIKI KAISHA UENO SEIYAKU OYO KENKYUSHO) [JP/JP]; 千 541-8543 大阪府大阪市中央区高麗橋2丁目4番8号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 上野隆三 (UENO, Ryuzo) [JP/JP]; 千 662-0038 兵庫県西宮市南郷町10-27 Hyogo (JP). 北山雅也 (KITAYAMA, Masaya) [JP/JP];
- (74) 代理人: 弁理士 大島正孝 (OHSHIMA, Masataka); 千 160-0004 東京都新宿区四谷四丁目3番地 福屋ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (国内): CN, JP, KR, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, TR).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: LIQUID-CRYSTAL POLYESTER RESIN

(54) 発明の名称: 液晶ポリエステル樹脂

(57) Abstract: A liquid-crystal polyester resin which contains 1 to 500 mmol% repeating units derived from 4-hydroxyisophthalic acid and/or salicylic acid as a comonomer and contains an alkali metal compound in an amount of 10 to 5,000 ppm in terms of the alkali metal. This resin has excellent colorability, improved heat resistance, and satisfactory mechanical properties.

(57) 要約:

4-ヒドロキシイソフタル酸および/またはサリチル酸に由来する繰返し単位
1~500ミリモル%を共重合成分としそしてアルカリ金属化合物をアルカリ金
属として10~5,000ppmで含有する液晶ポリエステル樹脂。

この樹脂は着色性に優れかつ耐熱性が向上すると共に機械的性質が良好である。

WO 01/81449 A1

THIS PAGE BLANK (USPTO)

明 細 書

液晶ポリエステル樹脂

5 技術分野

本発明は、液晶ポリエステルに関する。さらに詳しくは、着色性に優れ、かつ耐熱性が向上すると共に機械的性質の良好な液晶ポリエステル樹脂に関する。

従来の技術

- サーモトロピック液晶ポリエステル樹脂（以下液晶ポリエステル樹脂またはLCPと略称する）は、耐熱性、剛性のごとき機械物性、耐薬品性および寸法精度等に優れているため、成形品用途のみならず、繊維やフィルムといった各種用途にその使用が拡大しつつある。特にパーソナル・コンピュータや携帯電話等の情報・通信分野においては、部品の高集積度化、小型化、薄肉化、低背化等が急速に進んでおり0.5mm以下の非常に薄い肉厚部が形成されるケースが多く、
- 10 LCPの優れた成形性、すなわち、流動性が良好であり、かつバリが出ないという他の樹脂にない特徴を活かして、その使用量が大幅に増大している。

- その一方で、液晶ポリエステル樹脂組成物の重合時における流動性、耐熱性、機械物性等の性質のさらなる改善についても数多く提案されている。特表平8-511573号には特定のモノマー中にアルカリ金属を含有させ、それを共重合
- 20 することによって製造した、耐熱性の改善された液晶ポリエステル樹脂組成物が開示されている。

しかしながらカーボンブラック、アゾ顔料等の着色剤による均一な着色性および発色性については改善の余地があり、均一な着色性および発色性が要求される用途においてはその使用が制限されていた。

- 25 そこで、着色性が良好で、かつ耐熱性が向上すると共に機械的性質の良好な液晶ポリエステル樹脂が望まれていた。

発明の開示

本発明者らは、鋭意研究の結果、微量の4-ヒドロキシイソフタル酸および／

またはサリチル酸を他の重合性モノマーと共重合させ、さらに特定量のアルカリ金属イオンを含有させることによって、着色性に優れかつ耐熱性が向上すると共に機械的性質の良好な液晶ポリエステル樹脂が得られることを見出し、本発明に至ったものである。

- 5 すなわち本発明は、4-ヒドロキシイソフタル酸および／またはサリチル酸に由来する繰返し単位1～500ミリモル%を共重合成分としそしてアルカリ金属化合物をアルカリ金属として10～5,000ppmで含有することを特徴とする液晶ポリエステル樹脂を提供する。この樹脂は着色性に優れ、耐熱性が向上すると共に機械的性質の良好な液晶ポリエステル樹脂であり、これによって上記課題を解決するものである。

発明の好ましい実施の形態

- 本発明の液晶ポリエステル樹脂は、構成成分として4-ヒドロキシイソフタル酸および／またはサリチル酸に由来する繰返し単位を全繰返し単位中に1～500ミリモル%、好ましくは3～200ミリモル%、より好ましくは5～100ミリモル%で含有してなる。4-ヒドロキシイソフタル酸とサリチル酸を組合せて用いる場合は、この順序の比で、好ましくは10/90～90/10、より好ましくは30/70～70/30の重量比で含有させるのがよい。

- 本発明の液晶ポリエステル樹脂は、さらに、アルカリ金属として10～5,000ppm、好ましくは20～2,000ppm、より好ましくは50～500ppmのアルカリ金属化合物を含有してなる。

アルカリ金属としては、例えばリチウム、ナトリウム、カリウム、セシウムおよびルビジウムが挙げられる。これらのうち、好ましくはナトリウムおよびカリウムであり、より好ましくはカリウムである。

- また上記アルカリ金属化合物としては、アルカリ金属塩が好ましく、例えばアルカリ金属の硫酸塩、炭酸塩、重炭酸塩、硝酸塩、カルボン酸塩およびハロゲン塩が挙げられる。これらのうち、カルボン酸塩、硫酸塩および炭酸塩が好ましい。カルボン酸塩としては、例えば2～6個の炭素原子を含む脂肪族カルボン酸の塩およびポリマーの繰返し単位を導入するカルボン酸の塩が好ましく、例えば4-

ヒドロキシ安息香酸塩、4-ヒドロキシイソフタル酸塩、サリチル酸塩、2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸塩およびその他の芳香族カルボニル繰返し単位が由来する重合性モノマーの塩が挙げられる。

- 樹脂組成物中に存在するアルカリ金属塩の体積平均径で表した平均粒子径は、
- 5 好ましくは0.01~500 μm 、より好ましくは0.05~150 μm である。

本発明の液晶ポリエステル樹脂としては異方性溶融相を形成するポリエステル樹脂であり、当業者にサーモトロピック液晶ポリエステル樹脂と呼ばれているものであって、本発明の範囲に含まれるものであれば特に限定されない。

- 異方性溶融相の性質は直交偏向子を利用した通常の偏向検査法、すなわちホッ
- 10 トステージにのせた試料を窒素雰囲気下で観察することにより確認できる。

- 本発明の液晶ポリエステル樹脂としては、例えば芳香族ヒドロキシカルボン酸、芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール、芳香族ヒドロキシアミン、芳香族ジアミン、芳香族アミノカルボン酸などから選ばれたモノマー単位、特に芳香族ジカルボン酸、芳香族ジオール、芳香族ヒドロキシカルボン酸から選ばれたモノマー
- 15 単位を構成単位とする異方性溶融相を形成する液晶ポリエステルが好ましく用いられる。本発明の液晶ポリエステル樹脂には、上記モノマー単位の例示から理解されたとおり、分子鎖中にアミド基を含む液晶ポリエステルアミドも包含される。

- 芳香族ヒドロキシカルボン酸の具体例としては、例えば4-ヒドロキシ安息香酸、3-ヒドロキシ安息香酸、2-ヒドロキシ安息香酸、2-ヒドロキシ-6-
- 20 ナフトエ酸、2-ヒドロキシ-5-ナフトエ酸、3-ヒドロキシ-2-ナフトエ酸、2-ヒドロキシ-3-ナフトエ酸、4'-ヒドロキシフェニル-4-安息香酸、3'-ヒドロキシフェニル-4-安息香酸、4'-ヒドロキシフェニル-3-安息香酸、これらのアルキル、アルコキシまたはハロゲン置換体、ならびにこれらのエステル形成性誘導体が挙げられる。これらの中では4-ヒドロキシ安息
- 25 香酸、2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸が得られるポリエステルの特性や融点を調整しやすいという点から好ましい。

芳香族ジカルボン酸の具体例としては、テレフタル酸、イソフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、1,6-ナフタレンジカルボン酸、2,7-ナフタ

レンジカルボン酸、4, 4'-ジカルボキシビフェニル、ビス(4-カルボキシ
フェニル)エーテル、ビス(4-カルボキシフェノキシ)ブタン、ビス(4-カル
ボキシフェニル)エタン、ビス(3-カルボキシフェニル)エーテル、ビス(3
5 カルボキシフェニル)エタン等の芳香族ジカルボン酸、これらのアルキル、ア
ルコキシまたはハロゲン置換体、ならびにそれらのエステル形成性誘導体が挙げ
られる。これらの中ではテレフタル酸、2, 6-ナフタレンジカルボン酸が得ら
れる液晶ポリエステルの機械物性、耐熱性、融点温度、成形性を適度なレベルに
調節しやすいことから好ましい。

芳香族ジオールの具体例としては、例えばハイドロキノン、レゾルシン、2,
10 6-ジヒドロキシナフタレン、2, 7-ジヒドロキシナフタレン、1, 6-ジヒ
ドロキシナフタレン、4, 4'-ジヒドロキシビフェニル、3, 3'-ジヒドロ
キシビフェニル、3, 4'-ジヒドロキシビフェニル、4, 4'-ジヒドロキシ
ビフェニルエーテル、ビス(4-ヒドロキシフェニル)エタン等の芳香族ジオー
ル、これらのアルキル、アルコキシまたはハロゲン置換体など、ならびにそれら
15 のエステル形成性誘導体が挙げられる。これらの中では、ハイドロキノンおよび
4, 4'-ジヒドロキシビフェニルが重合時の反応性、得られる液晶ポリエステ
ルの特性などの点から好ましい。

芳香族ヒドロキシアミン、芳香族ジアミンおよび芳香族アミノカルボン酸の具
体例としては、例えば4-アミノフェノール、N-メチル-4-アミノフェノー
20 ル、3-アミノフェノール、3-メチル-4-アミノフェノール、4-アミノ-
1-ナフトール、4-アミノ-4'-ヒドロキシジフェニル、4-アミノ-4'
-ヒドロキシジフェニルエーテル、4-アミノ-4'-ヒドロキシビフェニルメ
タン、4-アミノ-4'-ヒドロキシビフェニルスルフィド、4, 4'-ジアミ
ノジフェニルスルホンなどの芳香族ヒドロキシアミン；1, 4-フェニレンジア
25 ミン、N-メチル-1, 4-フェニレンジアミン、N, N'-ジメチル-1, 4
-フェニレンジアミン、4, 4'-ジアミノフェニルスルフィド(チオジアニリ
ン)、2, 5-ジアミノトルエン、4, 4'-エチレンジアニン、4, 4'-ジ
アミノジフェノキシエタン、4, 4'-ジアミノビフェニルメタン(メチレンジ

アニリン)、4, 4'-ジアミノジフェニルエーテル(オキシジアニリン)などの芳香族ジアミン、4-アミノ安息香酸、2-アミノ-6-ナフトエ酸、2-アミノ-7-ナフトエ酸などの芳香族アミノカルボン酸、ならびにそれらのエステル形成性誘導体が挙げられる。

- 5 また本発明の液晶ポリエステルは、本発明の目的を損わない範囲で前記モノマーの他に、他のモノマー例えば脂環族ジカルボン酸、脂肪族ジオール、脂環族ジオール、芳香族メルカプトカルボン酸、芳香族ジチオール、芳香族メルカプトフェノールなどを共重合せしめてもよい。これらの他の成分は、芳香族ヒドロキシカルボン酸、芳香族ジカルボン酸および芳香族ジオールの合計に対し、10モル%
- 10 以下であるのが好ましい。

脂環族ジカルボン酸、脂肪族ジオールおよび脂環族ジオールの具体例としては、例えばヘキサヒドロテレフタル酸のごとき脂環族ジカルボン酸；トランス-1, 4-シクロヘキサンジオール、シス-1, 4-シクロヘキサンジオール、トランス-1, 4-シクロヘキサンジメタノール、シス-1, 4-シクロヘキサンジメタノール、トランス-1, 3-シクロヘキサンジオール、シス-1, 2-シクロヘキサンジオール、トランス-1, 3-シクロヘキサンジメタノールのごとき脂環族ジオールおよびエチレングリコール、1, 3-プロパンジオール、1, 4-ブタンジオール、ネオペンチルグリコールなどの直鎖状または分鎖状の脂肪族ジオール、ならびにこれらのエステル形成性誘導体が挙げられる。

- 20 芳香族メルカプトカルボン酸、芳香族ジチオール、芳香族メルカプトフェノールの具体例としては、例えば4-メルカプト安息香酸、2-メルカプト-6-ナフトエ酸、2-メルカプト-7-ナフトエ酸のごとき芳香族メルカプトカルボン酸；ベンゼン-1, 4-ジチオール、ベンゼン-1, 3-ジチオール、2, 6-ナフタレン-ジチオール、2, 7-ナフタレン-ジチオールのごとき芳香族ジチオール；4-メルカプトフェノール、3-メルカプトフェノール、6-メルカプトフェノール、7-メルカプトフェノールのごとき芳香族メルカプトフェノール
- 25 ならびにこれらのエステル形成性誘導体が挙げられる。

各成分からなる液晶ポリエステルは構成成分およびポリエステル中の組成比、

シークエンス分布によっては、異方性溶融相を形成するものとししないものが存在するが、本発明に使用される液晶ポリエステルは異方性溶融相を形成するものに限られる。

- 好ましい液晶ポリエステルの具体例としては、例えば下記のモノマー構成単位
- 5 からなるものが挙げられる。
- 4-ヒドロキシ安息香酸／2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／4,4'-ジヒドロキシビフェニル共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／イソフタル酸／4,4'-ジヒドロキシ
- 10 シビフェニル共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／イソフタル酸／4,4'-ジヒドロキシビフェニル／ハイドロキノン共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／ハイドロキノン共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸／テレフタル酸／4,
- 15 4'-ジヒドロキシビフェニル共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸／テレフタル酸／ハイドロキノン共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／2,6-ナフタレンジカルボン酸／4,4'-ジヒドロキシビフェニル共重合体、
- 20 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／2,6-ナフタレンジカルボン酸／ハイドロキノン共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／2,6-ナフタレンジカルボン酸／ハイドロキノン共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸／2,6-ナフタレ
- 25 ンジカルボン酸／ハイドロキノン共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／2,6-ナフタレンジカルボン酸／ハイドロキノン／4,4'-ジヒドロキシビフェニル共重合体、
- 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／4-アミノフェノール共重合体、

4-ヒドロキシ安息香酸／2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸／テレフタル酸／4-アミノフェノール共重合体、

4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／4,4'-ジヒドロキシビフェニル／4-アミノフェノール共重合体、

5 4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／エチレングリコール共重合体、

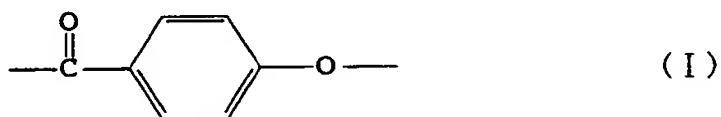
4-ヒドロキシ安息香酸／テレフタル酸／4,4'-ジヒドロキシビフェニル／エチレングリコール共重合体、

4-ヒドロキシ安息香酸／2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸／テレフタル酸／エチレングリコール共重合体、

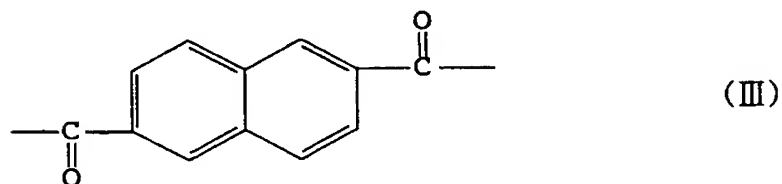
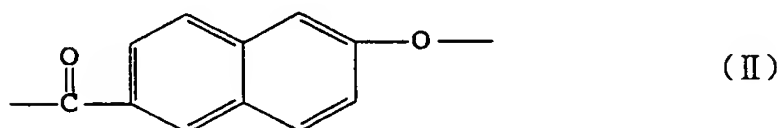
10 4-ヒドロキシ安息香酸／2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸／テレフタル酸／4,4'-ジヒドロキシビフェニル／エチレングリコール共重合体。

これらのうち本発明において、好ましい液晶ポリエステルの構成成分として、式(I)で表される繰返し単位と、下記式(II)で示される繰返し単位および(III)で示される繰返し単位の少なくともいずれか一方の繰返し単位とを含むのがよい。

15



20



25

式(I)で示される繰返し単位を導入するために使用されるモノマーとしては、4-ヒドロキシ安息香酸、式(II)で示される繰返し単位を導入するために使用されるモノマーとしては、2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸および式(III)で示

される繰返し単位を導入するために使用されるモノマーとしては、2, 6-ナフトレンジカルボン酸が挙げられる。

式(I)および(II)で示される繰返し単位を用いる場合、式(I)/(II)のモル比は、好ましくは10/90~90/10、より好ましくは80/20~55/45の範囲であるのがよい。式(I)および(III)で示される繰返し単位を用いる場合、式(I)/(III)のモル比は、好ましくは90/10~50/50、より好ましくは85/15~60/40の範囲であるのがよい。

また、式(I)、(II)および(III)の繰返し単位を用いる場合、式(I)/(II)のモル比が前記比率でありかつ式(I)および(II)の合計量/式(III)のモル比が好ましくは90/10~50/50、より好ましくは85/15~60/40の範囲であるのがよい。

なお、式(III)で示される繰返し単位を含む場合、ほぼ等モルの芳香族ジオールに由来する繰返し単位を含有するのが好ましい。

なお、本発明の液晶ポリエステル樹脂は、アルカリ金属化合物と、4-ヒドロキシイソフタル酸および/またはサリチル酸とを重合前あるいは重合途中で添加する方法により製造することができる。この場合、アルカリ金属化合物、4-ヒドロキシイソフタル酸および/またはサリチル酸は、あらかじめ芳香族オキシ安息香酸例えば4-ヒドロキシ安息香酸と一緒にして重合に用いるのが好ましい。

本発明の液晶ポリエステル樹脂の製造方法としては、特に制限はなく、前記構成成分の組合せからなるエステル結合を形成させる公知のポリエステルの重縮合法、例えば熔融アシドリシス法、スラリー重合法などを用いることができる。

熔融アシドリシス法は、本発明で用いるのに好ましい方法である。この方法は、最初にモノマーを加熱して反応物質の熔融溶液を形成し、続いて反応を続けて熔融ポリマーを得るものである。なお、縮合の最終段階で副生する揮発物(例えば酢酸、水など)の除去を容易にするために真空を適用してもよい。

スラリー重合法とは、熱交換流体の存在下で反応させる方法であって、固体生成物は熱交換媒質中に懸濁した状態で得られる。

熔融アシドリシス法およびスラリー重合法のいずれの場合においても、液晶ポ

リエステルを製造する際に使用される重合性モノマー成分は、常温において、ヒドロキシル基をエステル化した変性形態、すなわち低級アシルエステルとして反応に供することもできる。低級アシル基は炭素原子数2～5のものが好ましく、炭素原子数2または3のものがより好ましい。特に好ましくは前記モノマー成分

5 の酢酸エステルを反応に用いる方法が挙げられる。

モノマーの低級アシルエステルは、別途アシル化してあらかじめ合成したものを用いてもよいし、液晶ポリエステルの製造時にモノマーに無水酢酸等のアシル化剤を加えて反応系内で生成せしめることもできる。

溶融アシドリシス法またはスラリー重合法のいずれの場合においても反応時、

10 必要に応じて触媒を用いてもよい。

触媒の具体例としては、ジアルキルスズオキシド（例えばジブチルスズオキシド）、ジアリールスズオキシドなどの有機スズ化合物；二酸化チタン、三酸化アンチモン、アルコキシチタンシリケート、チタンアルコキシドなどの有機チタン化合物；カルボン酸のアルカリおよびアルカリ土類金属塩（例えば酢酸カリウム）；

15 ルイス酸（例えば BF_3 ）、ハロゲン化水素（例えば HCl ）などの気体状酸触媒などが挙げられる。

触媒の使用割合は、モノマーに対し好ましくは10～1,000ppm、より好ましくは20～200ppmである。

また本発明の液晶ポリエステル樹脂は、ペンタフルオロフェノール中で対数粘度を測定することが可能なものが好ましく、その場合、0.1g/dlの濃度で

20 60℃で測定した値で0.3以上が好ましく、より好ましくは0.5～10dl/g、さらに好ましくは1～8dl/gである。

また、本発明の液晶ポリエステル樹脂の溶融粘度は、キャピラリーレオメーターで測定した溶融粘度が、好ましくは1～1,000Pa・S、より好ましくは

25 5～300Pa・Sである。

本発明の液晶ポリエステル樹脂には、マトリクスである液晶ポリエステル樹脂のほか、繊維状、板状、粉状の充填剤および／または強化材の1種以上を配合せしめてもよい。

繊維状の充填剤および強化材としては、例えばガラス繊維、シリカアルミナ繊維、アルミナ繊維、炭素繊維、アラミド繊維などが挙げられる。これらの中では、ガラス繊維が物性とコストのバランスが優れている点から好ましい。

- 5 板状あるいは粉状の充填剤としては、例えばタルク、マイカ、グラファイト、ウォラストナイト、炭酸カルシウム、ドロマイト、クレイ、ガラスフレーク、ガラスビーズ、硫酸バリウム、酸化チタンなどが挙げられる。

- この液晶ポリエステル樹脂における繊維状、板状および粉状の充填剤および／または強化材の配合割合は、液晶ポリエステル樹脂 100 重量部に対して、好ましくは 0～100 重量部、より好ましくは 20～70 重量部である。前記繊維状、
10 板状および／または粉状の無機充填剤が 100 重量部を超える場合には、成形加工性が低下したり、成形機のシリンダーや金型の磨耗が大きくなる傾向がある。

- 本発明の液晶ポリエステル樹脂には、必要に応じさらに、高級脂肪酸、高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸アミド、高級脂肪酸金属塩、ポリシロキサン、フッ素樹脂などの離型改良剤；染料、顔料などの着色剤；酸化防止剤；熱安定剤；紫外
15 線吸収剤；帯電防止剤；界面活性剤などの通常の添加剤を 1 種または 2 種以上を組合せて添加してもよい。

高級脂肪酸、高級脂肪酸エステル、高級脂肪酸金属塩、フルオロカーボン系界面活性剤等の外部滑剤効果を有するものを成形に際してあらかじめペレットに付着せしめて用いてもよい。

- 20 その他の樹脂成分、例えばポリアミド、ポリエステル、ポリフェニレンスルフィド、ポリエーテルケトン、ポリカーボネート、ポリフェニレンエーテルおよびその変性物、ポリスルホン、ポリエーテルスルホン、ポリエーテルイミドなどの熱可塑性樹脂や、例えばフェノール樹脂、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂などの熱硬化性樹脂を 1 種または 2 種以上を組合せて添加してもよい。

- 25 これらの充填剤、強化材等はポリエステル樹脂中に添加され、バンバリーミキサー、ニーダー、一軸もしくは二軸押出機などを用いて、液晶ポリエステル樹脂組成物の融点近傍ないし融点プラス 100℃で熔融混練して組成物とすることができる。

得られた液晶ポリエステル樹脂およびその組成物は、従来公知の射出成形、圧縮成形、押出成形、ブロー成形などの成形法が適用でき、得られた成形品、フィルム、繊維などは電気・電子部品、機械機構部品、自動車部品等として有用である。

5 実施例

以下、実施例により本発明を詳述するが、本発明はこれに限定されるものではない。

なお、実施例中において下記の略号を使用する。

LCP：液晶ポリエステル。

10 SA：サリチル酸。

HIP：4-ヒドロキシイソフタル酸。

使用モノマー

POB：SAおよびHIPの濃度が高速液体クロマトグラフの検出限界以下であり、原子吸光測定によるカリウムおよびナトリウム量がいずれも1 ppmである

15 4-ヒドロキシ安息香酸。

BON6：原子吸光測定によるカリウムおよびナトリウム量がいずれも1 ppmである2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸。

TPA：アルカリ金属含有量1 ppm未満であるテレフタル酸。

HQ：アルカリ金属含有量1 ppm未満であるハイドロキノン。

20 NDA：アルカリ金属含有量1 ppm未満である2, 6-ナフタレンジカルボン酸。

重合条件

<重合条件-1>

以下に、4-ヒドロキシ安息香酸と2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸の比が、
25 この順序の比で、75/25（モル%）である組成のLCP（LCP-1）の重合条件について述べる。

トルクメーター付攪拌装置および留出管を備えた反応器に、全モノマー量が7.5 molとなるように、LCP-1の組成比でPOBとBON6を反応器に投入

し、ついで全モノマー量に対し1.025倍モルとなるように無水酢酸を仕込み、窒素雰囲気下で150℃まで昇温し、30分間保持した後、副生する酢酸を留去させつつ190℃まですみやかに昇温し、1時間保持した。その後、330℃まで3.5時間かけて昇温したのち、約30分かけて20mmHgにまで減圧を行い、所定のトルクを示したところで重合反応を終了させ、反応容器から取り出し道具を用いて取り出したのち、粉碎機でペレットにした。この時、留出した酢酸量は、ほぼ理論値どおりであった。

<重合条件-2>

次に、4-ヒドロキシ安息香酸、2-ヒドロキシ-6-ナフトエ酸、テレフタル酸、ハイドロキノンの比が、この順序の比で、65/15/10/10(モル%)である組成のLCP(LCP-2)の重合条件について述べる。

LCP-2の組成比でPOB、BON6、TPAおよびHQを仕込み、190℃で1時間保持した後、360℃まで3.75時間かけて昇温する以外は重合条件-1と同様に反応を行った。

15 <重合条件-3>

4-ヒドロキシ安息香酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、ハイドロキノンの比が、この順序の比で、58/21/21(モル%)である組成のLCP(LCP-3)の重合条件について述べる。

LCP-3の組成比でPOB、NDAおよびHQを仕込み、150℃まで昇温し30分間保持した後、190℃で1時間保持した後、360℃まで3.75時間かけて昇温する以外は重合条件-1と同様に反応を行った。

LCPの黑色化コンパウンド方法および試験片作成方法

重縮合で得た樹脂を、池貝(株)製2軸押出機PCM-30を用いて、樹脂ペレット100重量部に対し、カーボンブラック(三菱化学(株)製 三菱カーボンブラック #45)1重量部となるように熔融混練し、ストランドカッターを用いてペレット化した。

この黑色ペレットを、住友重機械(株)製射出成形機 MINIMAT 26/15(シリンダ温度:350-350-310-280℃、金型温度:70℃)

により射出成形し、 $12.7 \times 6.4 \times 3.0$ (mm) の短冊状試験片を得た。

着色度の評価方法

短冊状曲げ試験片を、分光光度計（サカタインクス社製 マクベスCOLOR-EYE 7000）の窓枠（ 10×7.5 mmΦ）にセットし、 L^* を測定した。

- 5 L^* は明るさに対応した数値であり、この値が低いほど試験片が黒く着色されていることを示すため、実施例の着色度に関する評価方法として使用した。

I z o d 衝撃値の測定方法

ASTM D 256 に準拠して測定した。

実施例 1

- 10 重合開始時に、LCP-1 の組成にさらにSAをSA残基が22.5ミリモル%、硫酸カリウムが樹脂中に669 ppmとなるように各々を反応容器に仕込み、重合条件-1 に示した方法で脱酢酸重合を行った。得られたポリマーについて着色度の評価およびI z o d 衝撃値を測定した。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は290 ppmであった。

15 実施例 2

重合開始時に、SAをHIPに変更し、HIP残基量が23.0ミリモル%となるようにHIPを仕込む以外は、実施例1と同様に重合および評価を行った。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は305 ppmであった。

20 実施例 3

重合開始時に、SAおよびHIPを残基量で22.5ミリモル%および23.0ミリモル%となるように仕込む以外は、実施例1と同様に重合および評価を行った。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は292 ppmであった。

25 実施例 4

重合開始時に、LCP-2 の組成にさらにSAおよびHIPを残基量で各々45.0ミリモル%および50.0ミリモル%になるように、硫酸カリウムが樹脂中に1,003 ppmとなるように反応容器に仕込み、重合方法-2 に示した方

法で脱酢酸重合を行い、実施例 1 と同様にして着色度の評価および I z o d 衝撃値を測定した。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は 4 3 7 p p m であった。

実施例 5

- 5 重合開始時に、L C P - 3 の組成にさらに S A および H I P を残基量で各々 2 5 . 0 ミリモル% および 5 0 . 0 ミリモル% になるように、硫酸カリウムが樹脂中に 7 0 0 p p m となるように反応容器に仕込み、重合方法 - 3 に示した方法で脱酢酸重合を行い、実施例 1 と同様にして着色度の評価および I z o d 衝撃値を測定した。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は 3 10 2 5 p p m であった。

比較例 1

- 重合開始時に、L C P - 1 の組成に対して、硫酸カリウムが樹脂中濃度で 6 6 9 p p m となるように反応容器に仕込み、重合方法 - 1 に示した方法で脱酢酸重合を行い、実施例 1 と同様にして着色度の評価および I z o d 衝撃値を測定した。15 なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は 3 0 3 p p m であった。

比較例 2

- 重合開始時に、S A および H I P を残基量で 2 2 . 5 ミリモル% および 2 3 . 0 ミリモル% となるように反応容器に仕込み、重合方法 - 1 に示した方法で脱酢20 酸重合を行い、実施例 1 と同様にして着色度の評価および I z o d 衝撃値を測定した。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は 3 p p m であった。

比較例 3

- 重合開始時に、L C P - 1 の組成に H I P を残基量で 6 8 0 ミリモル% となる25 ように、硫酸カリウムが樹脂中に 6 6 9 p p m となるように加える以外は、実施例 1 と同様に行い評価した。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は 2 8 8 p p m であった。

比較例 4

重合開始時に、LCP-1の組成にHIPを残基量で800ミリモル%となるように、硫酸カリウムが樹脂中濃度で669ppmとなるように加える以外は、実施例1と同様にして着色度の評価およびIzd衝撃値を測定した。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は293ppmであった。

5 比較例5

重合開始時に、LCP-2の組成に、硫酸カリウムが樹脂中濃度で1,003ppmとなるように反応容器に仕込み、重合方法-2に示した方法で脱酢酸重合を行い、実施例1と同様にして着色度の評価およびIzd衝撃値を測定した。なお、重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は441ppm

10 であった。

比較例6

重合開始時に、LCP-3の組成に、硫酸カリウムが樹脂中濃度で700ppmとなるように反応容器に仕込み、重合方法-3に示した方法で脱酢酸重合を行い、実施例1と同様にして着色度の評価およびIzd衝撃値を測定した。なお、
15 重合後に得られたペレットの原子吸光法によるカリウム量は322ppmであった。

表1に上記の評価結果をまとめて示す。

表 1

	実施例						比較例					
	1	2	3	4	5		1	2	3	4	5	6
基本組成	LCP-1	LCP-1	LCP-1	LCP-1	LCP-2	LCP-3	LCP-1	LCP-1	LCP-1	LCP-1	LCP-2	LCP-3
HIP 残基量** (ミレル%)	—	23.0	23.0	50.0	50.0	25.0	—	23.0	680	—	—	—
SA 残基量** (ミレル%)	22.5	—	22.5	45.0	50.0	50.0	—	22.5	—	800	—	—
硫酸カリウム量** (ppm)	669	669	669	1003	700	700	669	—	669	669	1003	700
カリウム量 (ppm)	290	305	292	437	325	325	303	3	288	293	441	322
L*	36	36	34	32	33	33	42	41	42	42	43	41
Izod 衝撃値 (J/m)	418	411	426	399	407	407	384	321	253	287	238	295

(注) **量は仕込量からの樹脂中濃度の計算値

本発明によれば、着色剤による着色性に優れかつ耐熱性が向上すると共に機械的性質の良好な液晶ポリエステル樹脂が得られる。

請求の範囲

1. 4-ヒドロキシイソフタル酸および／またはサリチル酸に由来する繰返し単位1～500ミリモル%を共重合成分としそしてアルカリ金属化合物をアルカリ金属として10～5,000ppmで含有することを特徴とする液晶ポリエステル樹脂。

2. アルカリ金属がカリウムおよび／またはナトリウムである請求項1記載の液晶ポリエステル樹脂。

10

3. アルカリ金属化合物が、アルカリ金属の硫酸塩、炭酸塩、重炭酸塩、硝酸塩、カルボン酸塩およびハロゲン塩よりなる群から選択される少なくとも1種の塩である請求項1記載の液晶ポリエステル樹脂。

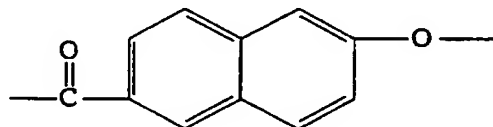
15 4. 樹脂中に存在するアルカリ金属塩の体積平均径で表した平均粒子径が、0.01～500μmである請求項1記載の液晶ポリエステル樹脂。

5. 液晶ポリエステル樹脂が下記式(I)で表される繰返し単位と、下記式(II)で表される繰返し単位および下記式(III)で表される繰返し単位の少なくともいずれか一方の繰返し単位とから主としてなる請求項1記載の液晶ポリエステル樹脂。

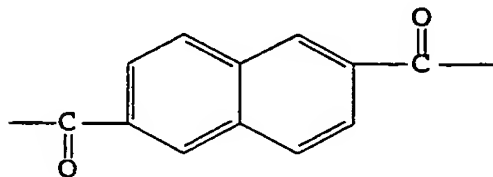
25



(I)



(II)



(III)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP01/03242

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl.⁷ C08G63/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl.⁷ C08G63/00-63/91

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1926-2001 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2001
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2001 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2001

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US, 5198572, A (General Electric Company), 30 May, 1993 (30.05.93), column 4, lines 45 to 67 & JP, 5-105744, A, column 1, lines 2-23 & EP, 498283, A	1-5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier document but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
09 July, 2001 (09.07.01)

Date of mailing of the international search report
17 July, 2001 (17.07.01)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

THIS PAGE BLANK (USPTO)

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int. C17 C08G63/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
Int. C17 C08G63/00-63/91

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-2001年
日本国公開実用新案公報 1971-2001年
日本国登録実用新案公報 1994-2001年
日本国実用新案登録公報 1996-2001年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	US 5198572 A (GENERAL ELECTRIC COMPANY) 30. 5月. 1993 (30. 05. 93)、第4欄, 第45-67行& JP 5-105744 A、第1欄, 第2-23行& EP 498283 A2	1-5

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献
「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
09. 07. 01

国際調査報告の発送日

17.07.01

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁 (ISA/JP)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
森川 聡

4 J 9268

電話番号 03-3581-1101 内線 3456

THIS PAGE BLANK (USPTO)